



Bruce Hamburg
Frank O. Jordan

Herbert F. Ruschmann
Jacqueline M. Steady
Marvin Turken, P.C.
Alfred D'Andrea, P.C.

Of Counsel
Thomas M. Furth
Lawrence I. Wechsler

Paralegal
Michelle C. Ramos

¹Pa. Bar only
²Va. and D.C. Bars only

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark Office
Washington, D.C. 20231

Law Offices
Jordan and Hamburg LLP
Chanin Building
122 East 42nd Street
New York, N. Y. 10168
Telephone (212) 986-2340
Facsimile (212) 953-7733

March 20, 2002

Patents, Trademarks
and Copyrights #4
email: jandh@lpattorneys.com
jandh@lpaw-worldwide.com
www.lpaw-worldwide.com
Telex 237057 JAH UR
Cable Address: PATENTMARK
Washington Office
Suite 520
2361 Jefferson Davis Highway
Arlington, Virginia 22202

COPY OF PAPERS
ORIGINALLY FILED

Re: Application of : Shigeru ASAMI, et al.
Serial No. : 10/056,119
Filed : January 24, 2002
For : CROSSLINKABLE POLYMER MATERIAL OF LOW
RELATIVE PERMITTIVITY, AND FILMS, SUBSTRATES AND
ELECTRONIC UNITS FORMED OF IT
Our Ref. : F-7287

Sir:

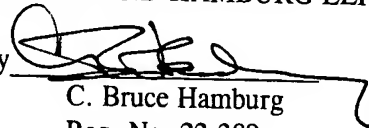
A right of priority under 35 U.S.C §119 is hereby claimed based on applicant's following
corresponding foreign application:

<u>Country</u>	<u>No.</u>	<u>Filing Date</u>
Japan	2001-016364	January 24, 2001

A certified copy of said foreign application is annexed hereto.

Respectfully submitted,

JORDAN AND HAMBURG LLP

By 
C. Bruce Hamburg
Reg. No. 22,389
Attorney for Applicant

CBH/db
Enc.

Certificate of Mailing Under 37 CFR 1.8

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the United States Postal Service as
first class mail in an envelope addressed to ASSISTANT COMMISSIONER FOR PATENTS,
WASHINGTON, DC 20231 on March 20, 2002

C. Bruce Hamburg
(Name)


(Signature)

RECEIVED
MAY 06 2002
TC 1700

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2001年 1月24日

出 願 番 号

Application Number:

特願2001-016364

[ST.10/C]:

[JP2001-016364]

出 願 人

Applicant(s):

ティーディーケイ株式会社
第一工業製薬株式会社

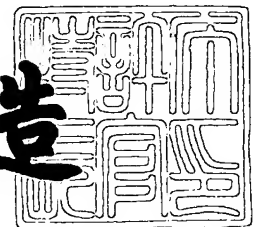
COPY OF PAPERS
ORIGINALLY FILED

RECEIVED
MAY 06 2002
TC 1700

2002年 1月11日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2001-3113471

【書類名】 特許願

【整理番号】 010124KTP1

【提出日】 平成13年 1月24日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C08F 22/10

【発明の名称】 架橋性低比誘電性高分子材料ならびにそれを用いたフィルム、基板および電子部品

【請求項の数】 7

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内

【氏名】 浅見 茂

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内

【氏名】 山田 俊昭

【発明者】

【住所又は居所】 滋賀県守山市石田町910-60

【氏名】 菅原 輝明

【発明者】

【住所又は居所】 京都府京都市西京区御陵大枝山町5丁目32番地6

【氏名】 堀田 寛史

【特許出願人】

【識別番号】 000003067

【住所又は居所】 東京都中央区日本橋一丁目13番1号

【氏名又は名称】 ティーディーケイ株式会社

【特許出願人】

【識別番号】 000003506

【住所又は居所】 京都府京都市下京区西七条東久保町55番地

【氏名又は名称】 第一工業製薬株式会社

【代理人】

【識別番号】 100059225

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区瓦町1丁目7番1号 第百生命大阪
瓦町ビル8階 蔦田内外国特許事務所

【弁理士】

【氏名又は名称】 蔦田 璋子

【電話番号】 06-6227-5535

【選任した代理人】

【識別番号】 100076314

【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区瓦町1丁目7番1号 第百生命大
阪瓦町ビル8階 蔦田内外国特許事務所

【弁理士】

【氏名又は名称】 蔦田 正人

【電話番号】 06-6227-5535

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008589

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9000608

【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

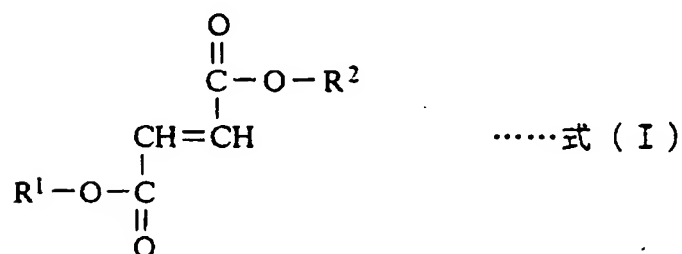
【発明の名称】 架橋性低比誘電性高分子材料ならびにそれを用いたフィルム、
基板および電子部品

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 単量体としてフマル酸ジエステルとエポキシ基含有（メタ）
アクリル酸エステルを含む単量体組成物を共重合して得られた低比誘電性高分子
材料。

【請求項 2】 前記フマル酸ジエステルが、下記式（I）で表される単量体
であることを特徴とする請求項 1 記載の低比誘電性高分子材料。

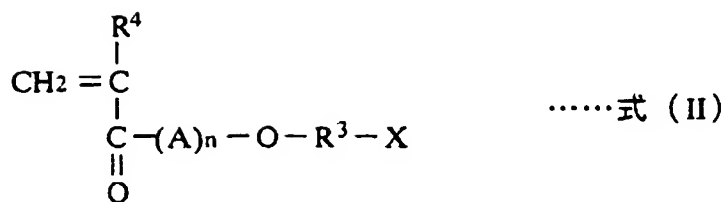
【化 1】



（式中、 R^1 はアルキル基またはシクロアルキル基を表わし、 R^2 はアルキル基
、シクロアルキル基またはアリール基を表わし、 R^1 および R^2 は同一でも異な
るものであっても良い。）

【請求項 3】 前記エポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルが、下記式
（II）で表される単量体であることを特徴とする請求項 1 または 2 記載の低比誘
電性高分子材料。

【化2】




(式中、 R^3 は炭素数 1～4 のアルキレン基を表し、

R^4 は H 又は CH_3 を表し

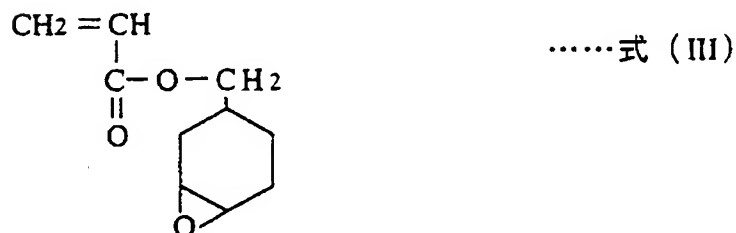
A は炭素数 2～4 のアルキレンオキサイドを表し、

n は 0～2 の整数を表し、

X は $\text{CH}_2 - \text{CH} -$ 又は  を表す。)

【請求項4】 前記エポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルが、下記式 (III) で表される単量体であることを特徴とする請求項3記載の低比誘電性高分子材料。

【化3】



【請求項5】 請求項1～4のいずれか1項に記載の低比誘電性高分子材料からなるフィルム。

【請求項6】 請求項1～4のいずれか1項に記載の低比誘電性高分子材料を用いてなる基板。

【請求項7】 請求項1～4のいずれか1項に記載の低比誘電性高分子材料を用いてなる電子部品。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、パターン形成能を有する新規な低比誘電性高分子材料、及び、それを用いたフィルム、基板、電子部品に関するものである。更に詳しくは、高周波帯域における電気特性において、低比誘電率、低誘電正接性能を有し、かつ高温領域までの耐熱性、金属箔に対する密着性ないし接着性に優れ、しかも薄膜パターン形成能を有する低比誘電性高分子材料に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、通信情報量の急増に伴い、通信機の小型化、軽量化、高速化が強く望まれており、これに対応できる低比誘電性高分子材料が要求されている。特に、自動車電話、デジタル携帯電話機等の携帯移動体通信、衛星通信に使用される電波の周波数帯域は、メガヘルツからギガヘルツ帯の高周波帯域のものが使用されている。これら通信手段として使用される通信機器の急速な発展の中で、基板、電子素子の小型高密度実装化が図られている。このメガヘルツからギガヘルツ帯のような高周波帯域に対応した通信機の小型化、軽量化の為には、優れた高周波電送特性を持つ電気絶縁材料の開発が必要である。更に、高密度実装を図ろうとする場合に、多層積層板とする以外の方法として、絶縁層を積み上げるビルドアップ工法には、使用される高分子材料としては、電気特性以外にビアホール形成の為にパターン形成ができる必要がある。

【0003】

このように、電気絶縁性で、低比誘電率である等の電気特性を有する材料として、通常、ポリオレフィン、塩素化塩化ビニル樹脂、フッ素系樹脂等の熱可塑性樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ポリイミド樹脂、エポキシ系樹脂、ビニルトリアジン樹脂（BTレジン）、架橋性ポリフェニレンオキサイド、硬化性ポリフェニレンエーテル等の熱硬化性樹脂等が提案されている。

【0004】

また、低比誘電率で誘電損失の少ない電気絶縁用材料として、特開平9-208627号公報には、シクロヘキシル基を持ったフマル酸ジエステルとビニル系

単量体との共重合体が提案されている。しかしながら、この電気絶縁用材料は、ビルトアップ基板に使用する場合に必要なパターン形成性において、架橋密度を調整することと、微細なパターン形成性との難点がある。

【0005】

一方、これら電気特性以外にパターン形成能を有する材料としては、感光性不飽和ポリエステル樹脂、感光性ポリイミド樹脂、感光性エポキシ樹脂等が提案されているが、実用上は感光性エポキシ樹脂を用いており、パターン形成には光硬化を用いているのが一般的である。

【0006】

これらのパターン形成能を有する材料は、比較的耐熱性が良好であるが、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂に関しては、比誘電率が3以上と比較的高く、満足される特性が得られていない。一方、感光性ポリイミド樹脂は実用レベルにまで達していない。

【0007】

このような現状に対して、本発明者らは先に、特願2000-347181号において、感光性エポキシ基を導入したフマル酸ジエステル単量体の単独重合体または、該単量体とフマル酸ジエステル単量体との共重合体からなる、低比誘電率で且つパターン形成性に優れた高分子材料を提案している。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】

本発明の目的は、金属導体層との密着性ないし接着性が良好で、かつ架橋によるパターン形成能を有し、しかも比誘電率および誘電正接が低く電気絶縁性に優れ、更に、耐熱性、フィルム強度、加工特性に優れた低比誘電性高分子材料を提供することである。

【0009】

そして、この低比誘電性高分子材料を絶縁基板上にコーティングあるいは貼り付け、架橋によりパターン形成できる加工特性に優れた基板を提供することである。さらには、この低比誘電性高分子材料から得られる高周波領域での使用に適する電子部品を提供することである。

【0010】

【課題を解決するための手段】

上記の目的を達成する本発明の高分子材料は、単量体としてフマル酸ジエステルとエポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルを含む単量体組成物を共重合して得られた低比誘電性高分子材料である。

【0011】

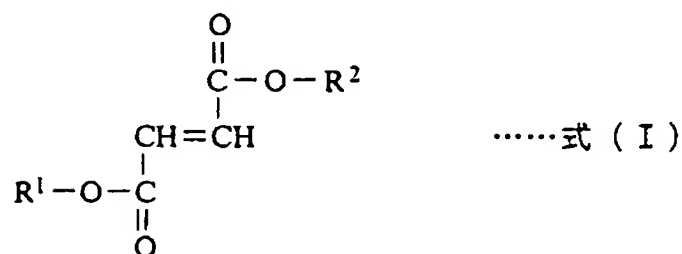
本発明において「（メタ）アクリル酸エステル」とは、アクリル酸エステル又はメタクリル酸エステルのことである。

【0012】

本発明の低比誘電性高分子材料においては、前記フマル酸ジエステルが、下記式（I）で表される単量体であることが好ましい。

【0013】

【化4】



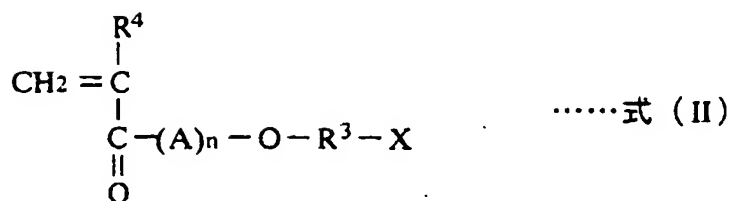
ここで、式中の R^1 はアルキル基またはシクロアルキル基を表わし、 R^2 はアルキル基、シクロアルキル基またはアリール基を表わし、 R^1 および R^2 は同一でも異なるものであっても良い。

【0014】

本発明の低比誘電性高分子材料においては、また、前記エポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルが、下記式（II）で表される単量体であることが好ましい。

【0015】

【化 5】




(式中、 R^3 は炭素数 1 ～ 4 のアルキレン基を表し、

R^4 は H 又は CH_3 を表し

A は炭素数 2 ～ 4 のアルキレンオキサイドを表し、

n は 0 ～ 2 の整数を表し、

X は $\text{CH}_2 - \text{CH} -$ 又は  を表す。)

【0 0 1 6】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

【0 0 1 7】

本発明の架橋によるパターン形成能を有する低比誘電性高分子材料は、単量体としてフマル酸ジエステルとエポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルとを含む単量体組成物を共重合して得られたものであり、分子中にエポキシ基含有する共重合体である。

【0 0 1 8】

本発明におけるフマル酸ジエステルとしては、高分子材料としたときに、高分子材料に低比誘電性や耐熱性を付与するものであれば、特に限定されるものではないが、上記式 (I) で表されるものが好適である。

【0 0 1 9】

式 (I) において、 R^1 、 R^2 で表されるアルキル基としては、炭素数 2 ～ 12 のものが好ましく、直鎖状であっても分岐を有するものであってもよく、さらにハロゲン原子等の置換基を有するものであってもよい。具体例としては、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、sec-ブチル基、t

ert-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ノニル基、ドデシル基などが挙げられる。

【0020】

また、式 (I) において、 R^1 、 R^2 で表されるシクロアルキル基としては、炭素数 3～14 のものが好ましく、単環であっても橋かけ環を有するものでもよく、更にアルキル基等の置換基を有するものであってもよい。具体例としては、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、アダマンチル基、ジメチルアダマンチル基等が挙げられる。

【0021】

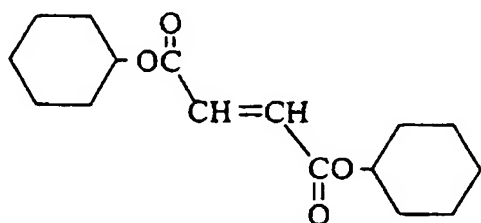
式 (I) において、 R^2 で表されるアリール基としては、炭素数が 6～18 のものが好ましく、単環が好ましいが多環であってもよく、置換基を有していてもよい。具体例としては、フェニル基等が挙げられる。

【0022】

フマル酸ジエステルの好ましい具体例としては、ジイソプロピルフマレート、ジシクロヘキシルフマレート、ジ-sec-ブチルフマレート等が挙げられ、その中でも特に、下記式 (IV) で表されるジシクロヘキシルフマレートが好適である。

【0023】

【化 6】



……式 (IV)

【0024】

本発明におけるエポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルは、分子中にエポキシ基を有する（メタ）アクリル酸エステルであれば、特に限定されるものではないが、上記式 (II) で表される（メタ）アクリル酸エステルが好適である。

【0025】

式 (II) 中において、 R^3 で表されるアルキレン基は、直鎖状であっても分岐を有するものであってもよく、具体的にはメチレン基、エチレン基、トリメチレン基、プロピレン基、テトラメチレン基などが挙げられる。

【0026】

式 (II) 中の R^4 は H 又は CH_3 を表し、H の場合にアクリル酸エステル、 CH_3 の場合にメタクリル酸エステルとなる。

【0027】

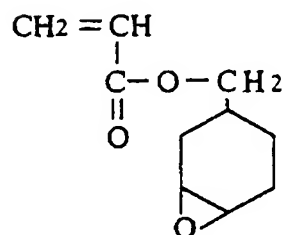
式 (II) 中の A で表されるアルキレンオキサイドは必須ではないが、例としてはエチレンオキサイド、プロピレンオキサイドなどが挙げられる。

【0028】

エポキシ基含有 (メタ) アクリル酸エステルの好ましい具体例としては、グリシジル (メタ) アクリレート、3, 4-エポキシシクロヘキシルメタノール (メタ) アクリレート等が挙げられ、その中でも特に、下記式 (III) で表される 3, 4-エポキシシクロヘキシルメタノールアクリレートが好適である。

【0029】

【化7】



……式 (III)

【0030】

エポキシ基含有 (メタ) アクリル酸エステル単量体は、本発明の高分子材料において、パターン形成性を発現するために用いられる。その配合比率は、高分子材料を使用する場所やパターンが微細かどうか等によって決定されるものであり、特に限定はされないが、一般的には単量体全体に占める割合として 5 モル% ~ 60 モル% であることが好適である。

【0031】

本発明の高分子材料は、上記したフマル酸ジエステルとエポキシ基含有 (メタ

）アクリル酸エステルとの共重合体からなるものであり、該共重合体は、ランダム共重合体、交互共重合体、ブロック共重合体のいずれであっても良い。なお、上記単量体組成物は、通常は単量体として上記フマル酸ジエステルとエポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルのみを含むが、本発明の趣旨を逸脱しない範囲内において他のビニル系モノマーを含有してもよい。

【0032】

本発明の低比誘電性高分子材料の分子量は特に限定されないが、絶縁基板へのビルドアップを形成する場合には、絶縁基板自身がかなりの機械的強度を有する為に、それに支えられる要素もあり、かつ、コーティングあるいは付着後に架橋使用され機械的強度が向上する為に絶縁基板ほどの機械的強度は必要ない。従って、絶縁基板ほどの高分子量体である必要はなく、成膜が可能な分子量、即ち、数平均分子量で1000以上であればよい。

【0033】

本発明において、前記のフマレート系重合体を製造するには、通常のラジカル重合法を用いることができる。重合に際し用いられる重合開始剤としては、エポキシ基を保護する上からも過剰の加熱は避ける必要があり、半減温度が80℃以下の有機過酸化物およびアゾ化合物の1種または2種以上を用いることが好ましい。

【0034】

このような重合開始剤としては、例えば、過酸化ベンゾイル、ジイソプロピルペルオキシジカーボネート、*t*-ブチルペルオキシジ-2-エチルヘキサノエート、クメンパーオキサイド、*t*-ブチルヒドロパーオキシド等の有機過酸化物、2, 2'-アゾビスブチロニトリル、アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)、1, 1'-アゾビス(シクロヘキサノ-1-カルボニトリル)、2, 2'-アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)等のアゾ系化合物が挙げられる。重合開始剤の使用量としては、原料単量体100重量部に対して、10重量部以下が好ましく、さらに好ましくは5重量部以下である。

【0035】

重合は、定法に従って行うことができ、一般には溶液重合法にて、不活性ガス

の存在下に、重合開始剤の種類によっても異なるが30～100℃の範囲の温度にて10～72時間保持することで、所定の高分子重合体を得られる。

【0036】

このようにして得られる本発明の高分子材料は、架橋によるパターン形成能を有するとともに、低比誘電性であり、成膜性、金属との密着性、機械的物性の面で優れる。

【0037】

本発明の低誘電率性高分子材料は、有機溶媒に溶解し脱溶媒して成膜することにより、金属導電体との密着性が良好な電気絶縁フィルムや電気絶縁層を簡単かつ容易に形成することができる。その際、有機溶媒にエポキシ基の開環重合触媒を添加しておけば、成膜後に加熱または放射線照射することによってエポキシ基を架橋させることができ、機械的物性を更に向上することができる。また、放射線照射の際に、パターンフィルム（フォトマスク）を通じて照射すると、放射線の照射を受けた部分が架橋して溶剤溶解性が大きく落ちる為、溶剤で未硬化部分を溶解洗浄することにより、任意なパターンを形成することができる。

【0038】

ここで使用できる放射線としては、赤外線、紫外線、電子線等があるが、露光感度、パターン線幅を考慮すると、紫外線の使用が一般的である。また、エポキシ基の重合開始触媒としては、放射線の照射によって重合を開始できるものであればよく、一般的には、ジアゾニウム系、ヨードニウム系、金属錯体系、アルミニウム錯体／アリルシアノール系等の光カチオン重合触媒が挙げられる。

【0039】

本発明の低誘電率性高分子材料は、上記のようにフィルムとしたり、塗膜としたり、さらにはバルク状や成形体など、種々の形態で用いることができる。従って、高周波用の共振器、フィルタ、コンデンサ、インダクタ、アンテナ等の電子部品の各種基板、チップ部品としてのフィルタ（例えば多層基板であるCフィルタ）や共振器（例えばトリプレート型共振器）、あるいは誘電体共振器などの支持台、さらには各種基板ないし電子部品のハウジングやケーシング、あるいはそれらのコーティングなどに用いることができる。

【 0 0 4 0 】

本発明のフィルムとしては、低誘電率性高分子材料をそれ自体でフィルム化したものでも、あるいはまた、ガラス繊維に含浸させて得られるフィルムでもよい。それ自体でフィルム化する方法としては、該高分子材料を溶剤に均一に溶解させた後、ガラス板、シリコンゴム板、金属板などの型上で溶剤を蒸発させることによって均一なフィルムを得るキャスト法が挙げられる。また、ガラス繊維を用いる場合、上記低誘電率性高分子材料の溶液をガラス繊維に含浸させ、その後脱溶剤することによりフィルムを得ることができる。

【 0 0 4 1 】

基板としては、部品搭載用オンボード基板、銅張積層板などが挙げられ、更には回路内蔵基板、アンテナ基板（例えばパッチアンテナ）などにも用いることができる。

【 0 0 4 2 】

上記のフィルムから所定の厚さの絶縁基板を得る場合には、上記フィルムを所定の膜厚になるよう残溶剤の状態に積層して乾燥させればよく、これにより、脱溶剤して目的の膜厚を有する基板を作成することができる。この時必要に応じて加圧プレスすることも可能である。また、その際、フィルム間に銅などの金属導体層を挟み込むことにより多層基板を作成することもできる。

【 0 0 4 3 】

本発明の低誘電率性高分子材料は、上記のようにパターン形成能を有するため、銅張積層板等の積層板における感光層としての利用が特に好適である。すなわち、本発明の基板には、絶縁基板上に銅などの金属層を備え、その上に上記低誘電率性高分子材料からなる感光層を備える積層板も含まれる。

【 0 0 4 4 】

【実施例】

以下に実施例を示すが、本発明はこれに限定されるものではない。

【 0 0 4 5 】

（合成例 1）

ジシクロヘキシルフマレート（ di-CHF ）85重量部およびグリシジルア

クリレート (GAA) 15 重量部をガラス製アンプルにとり、ラジカル重合開始剤としてアゾビスイソブチロニトリル (AIBN) 1 重量部、さらに精製ベンゼン 10 重量部をガラスアンプルにとった後、十分窒素置換を行い、減圧および脱気を繰り返し、アンプルを真空下溶封した。次に、このアンプルを 40℃ の恒温槽に入れ、72 時間保持した。重合終了後、内容液を大量のメタノール中に投入し、重合体を沈殿分離し、減圧乾燥させ、目的の共重合体を得た。

【0046】

(合成例 2)

合成例 1 において、GAA のかわりに、グリシジルメタクリレート (GMA) を用いるほかは同様にして、共重合体を得た。

【0047】

(合成例 3)

合成例 1 において、GAA のかわりに、3, 4-エポキシシクロヘキシルメタノールアクリレート (ECHMA) (ダイセル化学工業株式会社製、商品名: CYCLOMER A200) を用いるほかは同様にして、共重合体を得た。

【0048】

(合成例 4)

ジイソプロピルマレート (di-iPF) 10 量部、di-CHF 70 重量部および GAA 20 重量部を用い、ラジカル重合開始剤としてジイソプロピルペルオキシジカーボネート (IPP) 0.1 重量部を用いた以外は合成例 1 と同様にして、共重合体を得た。

【0049】

(合成例 5)

di-iPF 5 量部、di-CHF 60 重量部および ECHMA 35 重量部を用い、ラジカル重合開始剤としてジイソプロピルペルオキシジカーボネート (IPP) 0.1 重量部を用いた以外は合成例 1 と同様にして、共重合体を得た。

【0050】

(比較合成例 1)

d i - i P F 1 0 0 重量部を用いた以外は、合成例 1 と同様にして、d i - i P F の重合体を合成した。

【 0 0 5 1 】

(比較合成例 2)

d i - C H F 1 0 0 重量部を用いた以外は、合成例 1 と同様にして、d i - C H F の重合体を合成した。

【 0 0 5 2 】

合成例 1 ～ 5 および比較合成例 1 ～ 2 で得られた各々の重合体および共重合体の数平均分子量 M_n および各種特性を表 1 に示す。

【 0 0 5 3 】

(実施例)

合成例 1 ～ 5 および比較合成例 1 ～ 2 で得られた各重合体 0. 5 g をそれぞれベンゼン 5 0 m l に溶解させ、それに、重合開始剤 (商品名 : アデカオプトマー S P - 1 5 0、旭電化工業株式会社製) を固形分に対して 0. 5 重量% 加えた。得られた溶液を平滑な直径 2 0 c m 程度のシャーレに注ぎ、その後、ベンゼンをゆっくりと蒸発させてフィルムを得た。次いで、高圧水銀灯 8 0 W × 1 灯を用いて積算照度 $2 0 J / c m^2$ にて紫外線を照射し、その後の樹脂物性を測定した。結果を表 1 に示す。

【 0 0 5 4 】

【表 1】

合成番号	重合モノマー (重量比)	重合体・共重合体の物性			紫外線照射後の重合体・共重合体（フィルム）の物性				
		溶解性 ベンゼン	分子量 (Mn)	軟化温度 (°C)	溶解性 ベンゼン/THF	比誘電率ε 1 GHz/2 GHz/5 GHz	誘電正接 tan δ 1GHz/2 GHz/5 GHz (×10 ⁻³)	密着性	半田 耐熱性
合成例 1	di-CHF (85)/GAA (15)	溶解	23.2×10 ⁴	300	不溶／不溶	2.5/2.4/2.6	3.1/3.3/3.0 (×10 ⁻³)	◎	◎
合成例 2	di-CHF (85)/GMA (15)	溶解	21.5×10 ⁴	299	不溶／不溶	2.6/2.5/2.3	3.0/2.8/2.5 (×10 ⁻³)	◎	◎
合成例 3	di-CHF (85)/ECHMA (15)	溶解	27.8×10 ⁴	308	不溶／不溶	2.2/2.3/2.1	2.7/2.7/2.6 (×10 ⁻³)	◎	◎
合成例 4	di-iPF (10)/di-CHF (70)/GAA (20)	溶解	29.4×10 ⁴	302	不溶／不溶	2.7/2.7/2.6	3.3/3.5/3.5 (×10 ⁻³)	◎	◎
合成例 5	di-iPF (5)/di-CHF (60)/ECHMA (35)	溶解	26.2×10 ⁴	303	不溶／不溶	2.3/2.4/2.3	2.6/2.8/2.4 (×10 ⁻³)	◎	◎
比較合成例 1	di-iPF (100)	溶解	10.3×10 ⁴	260	溶解／溶解	2.1/2.0/2.2	5.1/4.8/5.4 (×10 ⁻³)	○	○
比較合成例 2	di-CHF (100)	溶解	12.3×10 ⁴	300	溶解／溶解	2.0/2.1/2.2	1.8/2.0/1.9 (×10 ⁻³)	○	○

溶解性：重合体・共重合体およびフィルムを、ベンゼン、THFに1夜浸漬

分子量：GPC (ゲルパーミエーションクロマトグラフィー) 測定、標準スチレン換算

軟化点：JIS K7126に準拠

誘電特性：平滑なシャーレ上で得られたフィルムを所定の大きさに切りだし、

1GHz、2GHz及び5GHzにおける誘電率と誘電正接を摂動法により測定した。

密着性：フィルムに銅を真空蒸着し、セロハンによる180度ヒーリング試験。

◎…きわめて良好 ○…良好 △…やや良好 ×…不良

半田耐熱性：JIS C0054に準拠。260°C×120秒

◎…きわめて良好 ○…良好 △…やや良好 ×…不良

【 0 0 5 5 】

表 1 に示すように、本発明に係る合成例 1 ～ 5 の高分子材料で形成された膜は、紫外線照射によってベンゼン及び T H F に不溶となり、パターン形成能を有することが確認された。また、金属との密着性が良好で、半田耐熱性に優れるとともに、周波数帯が 1 G H z から 5 G H z の高周波数帯において、比誘電率 (ϵ) が 2. 1 ～ 2. 7、かつ、誘電正接 ($\tan \delta$) が 0. 0 0 2 4 ～ 0. 0 0 3 5 であり、優れた電気絶縁性を備えていた。

【 0 0 5 6 】

【発明の効果】

本発明の低比誘電率性高分子材料は、フマル酸ジエステルとエポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルを共重合して得られるものであり、架橋によるパターン形成能を有するとともに、成膜性、耐熱性に優れ、金属導体層との密着性ないし接着性も良好である。また、メガヘルツからギガヘルツ帯の高周波帯域における比誘電率および誘電正接が低く電気絶縁性に優れる。

【 0 0 5 7 】

そして、この低比誘電性高分子材料を用いることにより、金属導電体との密着性が良好な電気絶縁フィルムを簡単かつ容易に形成することができ、また、パターン形成可能な加工特性に優れる多層基板を得ることができ、さらに、高周波領域での使用に適する電子部品が得られる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 金属導体層との密着性ないし接着性が良好で、かつ架橋によるパターン形成能を有し、しかも比誘電率および誘電正接が低く電気絶縁性に優れ、耐熱性に優れた低比誘電性高分子材料を提供する。

【解決手段】 単量体としてフマル酸ジエステルとエポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステルを含む単量体組成物を共重合して得られた低比誘電性高分子材料である。

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003067]

1. 変更年月日 1990年 8月30日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都中央区日本橋1丁目13番1号

氏 名 ティーディーケイ株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003506]

1. 変更年月日 1990年 8月 7日

[変更理由] 新規登録

住 所 京都府京都市下京区西七条東久保町55番地

氏 名 第一工業製薬株式会社